

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 3 月 11 日 (11.03.2004)

PCT

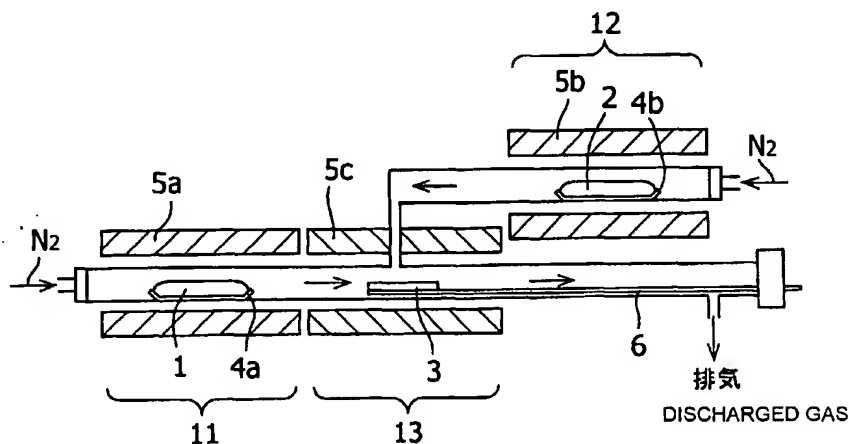
(10) 国際公開番号
WO 2004/020688 A1

- (51) 国際特許分類: C23C 16/30, C01G 1/12, 49/12, C07D 251/14
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/010814
- (22) 国際出願日: 2003 年 8 月 27 日 (27.08.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2002-252450 2002 年 8 月 30 日 (30.08.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): スズキ株式会社 (SUZUKI MOTOR CORPORATION) [JP/JP]; 〒432-8611 静岡県 浜松市 高塚町 3 0 0 番地 Shizuoka (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 高橋 正志 (TAKAHASHI, Tadashi) [JP/JP]; 〒432-8611 静岡県 浜松市 高塚町 3 0 0 番地 スズキ株式会社内 Shizuoka (JP). 高橋 直行 (TAKAHASHI, Naoyuki) [JP/JP]; 〒430-0811 静岡県 浜松市 名塚町 2 6 6 名塚住宅 1-5 0 5 Shizuoka (JP). 中村 高遠 (NAKAMURA, Takato) [JP/JP]; 〒430-0904 静岡県 浜松市 中沢町 7 8-9-6 0 5 Shizuoka (JP).
- (74) 代理人: 奥山 尚一, 外 (OKUYAMA, Shoichi et al.); 〒107-0052 東京都 港区 赤坂三丁目 2 番 1 2 号 赤坂ノアビル 8 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,

[続葉有]

(54) Title: METAL SULFIDE THIN FILM AND METHOD FOR PRODUCTION THEREOF

(54) 発明の名称: 金属硫化物薄膜およびその製造方法



(57) Abstract: A method for producing a metal sulfide thin film, which comprises using a metal halide such as an iron halide (for example, FeCl₃, FeI₃, FeBr₃, FeCl₂, FeI₂ or FeBr₂) as a first material and a thioamide compound such as thioacetamide as a second material, and preferably, vaporizing the materials and reacting them under atmospheric pressure; and a metal sulfide thin film produced by the method. The metal sulfide thin film is a single phase thin film having high quality, and the method allows the production of the metal sulfide thin film at a low cost and with ease.

(57) 要約: 金属硫化物の良質な単相薄膜、および金属硫化物薄膜を安価にかつ容易に製造する方法を提供することを目的とする。本発明によると、第 1 原料としてハロゲン

[続葉有]



ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

化鉄 (FeCl_3 、 FeI_3 、 FeBr_3 、 FeCl_2 、 FeI_2 、 FeBr_2) 等の金属ハロゲン化物、第 2 原料としてチオアセトアミド等のチオアミド化合物を用い、好ましくは、これらを気化させ、大気圧下で反応させる金属硫化物薄膜の製造方法およびこの方法により製造された金属硫化物薄膜が提供される。

10/525 443

明細書

DT15 Rec'd PCT/PTO 24 FEB 2005

発明の名称

金属硫化物薄膜およびその製造方法

技術分野

- 5 本発明は、金属硫化物薄膜およびその製造方法に関する。

背景技術

- 硫化鉄〔特に二硫化鉄（パイライト FeS_2 ）〕薄膜は、薄膜太陽電池における光吸収材料として期待され、近年盛んに開発が進められている。このような金属硫化物薄膜を工業製品として実用化するためには、薄膜の質の高さが要求されるばかりでなく、薄膜を安価にかつ大量に生産可能とすることなどが要求され、これら
- 10 条件を満たす技術の開発がなされてきた。

このような金属硫化物薄膜の製造方法として、MOCVD、スパッタリングなど、真空下での薄膜製造方法、または金属薄膜の熱処理による硫化などが挙げられる。

- 15 MOCVD（有機金属化学気相蒸着法：Metal Organic Chemical Vapor Deposition）は、薄膜材料を高温中で反応させて基材上に成膜するCVDプロセスのうち、特にその材料に有機金属を用いる方法をいい、MOCVDによる薄膜製造法は、例えば、Journal of Crystal Growth, 151 巻, 325 頁, 1995 に開示されている。

- 20 また、スパッタリングは、金属などに不活性ガスを吹きつけ、それにより弾き出された分子を目的物の表面につける方法をいい、スパッタリングによる薄膜製造法は、例えば、Thin Solid Films, 246 巻, 6 頁, 1994 に開示されている。

- しかしながら、これらの製造方法は高価な真空系設備やTBDS等の高価な原料が必要であり、かつ成膜速度が遅い、あるいは工程数が多いなど工業化に関して多くの問題点を抱えていた。特に硫化鉄は、トロイライト FeS 、ピロータイト Fe_{1-x}S 、パイライト FeS_2 、マルカサイト FeS_2 といった様々な化合物形態を有しており、これらの中から良質な単相のみからなる薄膜を製造するには厳密な条件設定等が必要であった。なかでも薄膜太陽電池用材料として期待される二硫化鉄（パイライト FeS_2 ）薄膜の製造は困難であり、硫黄の欠陥が存在
- 25

すると薄膜の一部がピロータイト Fe_{1-x}S になるなど、多相薄膜となってしまうといった問題があった。

- また、金属硫化物薄膜の製造方法として、特開平 8-199333 号公報、特開平 8-218161 号公報において、 $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Cu}_2\text{O}$ 膜または $\text{Fe} + \text{S}$ 膜を製造後、硫黄を含む雰囲気中で加熱処理することにより金属を硫化する方法が提案されている。しかし、成膜後に加熱処理などの後処理がさらに必要となるなど工程が複雑であり、また、加熱処理により完全に金属を硫化するための条件設定が難しく、良質な単相薄膜を製造することが困難であるなどの問題があった。

発明の開示

- 10 本発明は、金属硫化物の良質な単相薄膜、および該薄膜を安価にかつ容易に製造する方法を提供することを目的とする。

- 上記目的を達成するために、本発明は、金属硫化物薄膜の製造方法であって、第 1 原料として金属ハロゲン化物、第 2 原料としてチオアミド化合物を用いることを特徴とする。好ましくは、前記金属ハロゲン化物および前記チオアミド化合物は気化させ、大気圧下で反応させる。

- なお、前記金属ハロゲン化物はハロゲン化鉄が好ましく、特に、前記ハロゲン化鉄は、 FeCl_3 と、 FeI_3 と、 FeBr_3 と、 FeCl_2 と、 FeI_2 と、 FeBr_2 とからなる群から選ばれる少なくとも 1 つであると好ましい。また、前記チオアミド化合物はチオアセトアミド (CH_3CSNH_2) が好ましい。なお、
20 「チオアミド化合物」とは、チオアミド基 ($-\text{CSNH}_2$) を有する有機化合物 ($\text{R}-\text{CSNH}_2$) を意味する。

なお、特に、副産物としてトリアジン化合物が生成すると好ましい。

また、本発明は、別の側面として、金属硫化物薄膜であり、該金属硫化物薄膜は、上記の製造方法により製造されたことを特徴とする。

- 25 本発明によると、原料である金属ハロゲン化物およびチオアミド化合物は、従来の真空系薄膜製造装置で用いるような高純度材料である必要はなく、このため安価な原料により金属硫化物薄膜を製造することができる。また、硫黄源をチオアミド化合物とすることで、比較的容易に硫黄元素を供給できる。このため、金属ハロゲン化物を効率的に硫化することができ、欠陥などの少ない良質の金属硫

化物薄膜を製造することができる。特に、以下に詳細に説明するように、チオアミド化合物が反応する過程で、トリアジン化合物が副生し、さらに単体の硫黄元素が生成するので、この硫黄元素により金属ハロゲン化物を効率的に硫化することが可能となり、良質な金属硫化物の単相薄膜を、比較的低温で製造することができる。

また、本発明にかかる金属硫化物薄膜の製造方法は膜の成長速度が速く、また、成膜と同時に良質な金属硫化物薄膜が完成するため加熱処理による硫化といった後工程が不要である。

また、大気圧下で金属硫化物薄膜を製造できるため、特に硫黄元素などの欠陥の発生が抑制され、良質な金属硫化物薄膜が製造できる。さらに、高価な真空系設備が不要であるため、設備を簡易化できる。

また、特に、ハロゲン化鉄とチオアミド化合物を原料にすることで、薄膜太陽電池の光吸収材料として期待される硫化鉄単相薄膜（パイライト FeS_2 ）を製造することができる。

以下に詳細に説明するように、本発明によれば、金属硫化物の良質な単相薄膜、および金属硫化物薄膜を安価にかつ容易に製造する方法が提供される。また、本発明にかかる金属硫化物薄膜の製造方法は、膜の生成速度も速く、真空計設備等の高価な設備を要しないため、工業化に適している。

図面の簡単な説明

図 1 は、本発明に係る金属硫化物薄膜を実施するための装置の 1 実施の形態を示す概念図である。

図 2 は、本発明に係る金属硫化物薄膜の製造方法により製造した硫化鉄（パイライト FeS_2 ）薄膜の X 線回折の結果を示すグラフである。

図 3 は、本発明に係る金属硫化物薄膜の製造方法により製造した硫化鉄（パイライト FeS_2 ）薄膜のガスクロマトグラフと質量分析の解析結果を示すグラフである。

図 4 は、チオアセトアミドからトリメチルトリアジンが生成される過程の反応メカニズムを示す模式図である。

発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明に係る金属硫化物薄膜の製造方法を、その実施の形態について、添付図面を参照して説明する。もっとも、以下の実施の形態は本発明を限定するものではない。

- 5 図1に、本発明を実施するための装置について、その1実施の形態を示す。本装置は、水平置き反応器であり、主要な要素として第1原料気化部11、第2原料気化部12、成膜部13を備える。

第1原料気化部11は、その周囲に、第1原料気化部11を所定の温度に制御するためのヒーター5aを備え、その内部に、第1原料を入れるための原料ポート4aを備える。また、第1原料気化部11は、その一端からキャリアガスを供給可能であり、他端からガスを送出可能である。

同様に、第2原料気化部12は、その周囲に、第2原料気化部12を所定の温度に制御するためのヒーター5bを備え、その内部に、第2原料を入れるための原料ポート4bを備える。また、第2原料気化部12は、その一端からキャリア

15 ガスを供給可能であり、他端からガスを送出可能である。

成膜部13は、その周囲に、成膜部13を所定の温度に制御するためのヒーター5cを備え、その内部に、基材3を配置するための基材支持台6を備える。また、上記した、第1原料気化部11、第2原料気化部12から送出されたガスは、成膜部13に供給される。なお、成膜部13に供給する各原料を含むガスの、

20 基材3に対する向きは、特に限定されるものではない。すなわち、ガスを供給する向きは、基材3の薄膜を設ける面に対して平行であっても垂直であってもよく、さらにある角度をもっているもよい。

次に、図1の装置を用いて、本発明にかかる金属硫化物薄膜の製造方法を実施する形態について説明する。

- 25 まず、第1原料として金属ハロゲン化物1を、第2原料としてチオアミド化合物2を、それぞれ原料ポート4a、4bに入れる。ここで、上記したように、金属ハロゲン化物1としてハロゲン化鉄が好ましく、ハロゲン化鉄として FeCl_3 、 FeI_3 、 FeBr_3 、 FeCl_2 、 FeI_2 、 FeBr_2 が好ましい。特に、扱いが容易、かつ値段が安いという理由で、 FeCl_3 が好適である。また、チオ

アミド化合物 2 としては、チオアセトアミドが好ましい。なお、原料となる金属ハロゲン化物 1 とチオアミド化合物 2 の純度は、従来の真空系薄膜製造装置で用いるような高純度材料である必要はなく、例えば 99.5% 程度の純度があれば十分である。

- 5 次に、第 1 原料気化部 1 1 および第 2 原料気化部 1 2 を加熱することにより、各原料の一部を気化する。ここで、各原料を加熱する温度は、各原料が気化する温度であれば良く、例えば、第 1 原料として FeCl_3 を用いた場合は、第 1 原料気化部 1 1 は約 180℃ とすると好ましく、第 2 原料としてチオアセトアミドを用いた場合は、第 2 原料気化部 1 2 は約 70℃ とすると好ましい。

- 10 次に、気化した各原料は、キャリアガスにより成膜部 1 3 に供給する。このとき基材 3 の配置された成膜部 1 3 は加熱し、所定の温度に保持しておく。

ここで、成膜部 1 3 は、好ましくは 350～450℃、さらに好ましくは 375～425℃ に加熱する。この時、装置内の圧力は大気圧に保つことができる。

- 15 また、基材 3 は特に限定されるものではなく、ガラスあるいは単結晶材料であるサファイア、シリコンなどを用いることができる。また、基材 3 上に金属硫化物薄膜との格子不整合度の差を緩和するためのバッファ層を設け、このバッファ層の上に金属硫化物薄膜を形成することにより、さらに結晶性に優れた金属硫化物薄膜（例えば単結晶薄膜）を製造することもできる。なお、バッファ層は通常の被膜処理により形成することができ、また、バッファ層としては、例
20 えば、硫化鉄薄膜を作製する場合には、 Fe 、 FeS 、 Fe_{1-x}S 、 FeS_2 、 MoS_2 などを用いることができる。

成膜部 1 3 で加熱された各原料は反応し、チオアミド化合物 2 からトリアジン化合物が生成すると同時に、基材 3 上に金属硫化物の薄膜が形成される。

- 25 なお、各原料の供給量は各原料の加熱温度、キャリアガス流量により制御可能である。また、キャリアガスは、アルゴン、ヘリウムなどの不活性ガスも使用できるが、安価という点で窒素 (N_2) が好ましい。

[実施例]

以下に、本発明にかかる金属硫化物薄膜の製造方法の実施例を示す。本実施例は、上記した実施の形態に基づき、図 1 と同様の、水平置きで石英ガラス製の反

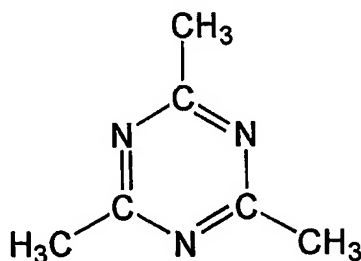
応器を用いて行った。

本実施例では、第1原料として FeCl_3 、第2原料としてチオアセトアミド
(CH_3CSNH_2)を用いて、硫化鉄(パイライト FeS_2)薄膜を製造した。

- 5 12、成膜部13は、それぞれ 180°C 、 70°C 、 400°C に加熱した。また、
キャリアガスとして N_2 を、総ガス流量が 1200 mL/min となるように供給し、60分間成膜を行った。なお、この間、装置内の圧力は大気圧に保った。

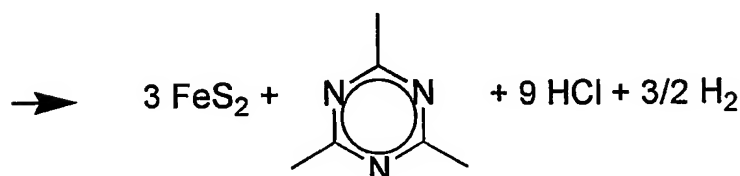
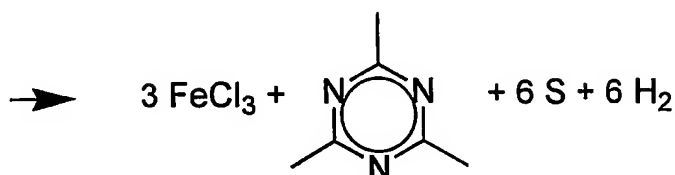
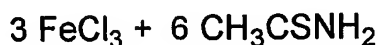
- ガラス基材上に形成された薄膜をX線回折した結果、およびJCPDSカード
10 に示されている FeS_2 (パイライト)、 FeS_2 (マルカサイト)、 Fe_{1-x}S (ピ
ロータイト)のX線回折パターンを図2に示す。この結果から、薄膜太陽電池の
光吸収材料を目的とする FeS_2 (パイライト)薄膜が形成されていることがわ
かった。また、この FeS_2 (パイライト)薄膜は不純物の混在や欠陥のない良
質な単相薄膜であった。ここから、本発明にかかる薄膜の製造方法は、成膜後に
15 硫黄雰囲気中で加熱処理(硫化)などの後処理をする必要がなく、工業化に対し
て非常に有利であることが了解された。

- また、本発明者らは、ガスクロマトグラフと質量分析を組み合わせることによ
り、本実施例での反応機構を明らかにした。図3に、チオアセトアミドを所定の
温度で加熱した際に生成する物質をガスクロマトグラフ質量分析計により分析し
た結果を示す。図3に示すように、基材温度 368°C 付近において、以下の式に
20 示すトリメチルトリアジン(Trimethyltriazine)が生成していることがわかった。



- ここから、図4に示すように、本実施例の成膜温度である 400°C 付近におい
25 て、チオアセトアミドからトリメチルトリアジン21が生成されることが分かる。

以上の結果から、以下の式に示す反応機構で、 FeCl_3 およびチオアセトアミドからパイライト FeS_2 が生成すると考えられる。



5

つまり、加熱化においてチオアセトアミドからトリメチルトリアジン 21 が生成し、その過程で単体の硫黄 22 が同時に生成する。さらにこの単体の硫黄 22 が FeCl_3 を硫化することによりパイライト FeS_2 単相薄膜が形成される。

10 以上のように、チオアミド化合物からトリアジン化合物が生成される過程により、単体の硫黄が生成され、この硫黄が金属硫化物薄膜の生成に寄与することにより、後工程なしで良質な金属硫化物薄膜を製造できる。

[比較例]

本発明者らは、比較実験として、第1原料として FeCl_3 、硫黄源となる第2原料として硫化水素(H_2S)ガス、あるいはチオ尿素(CH_3CSCH_3)を用いて薄膜の製造を試みた。なお、硫化水素(H_2S)ガスは、硫黄源として一般的に用いられるものであり、チオ尿素(CH_3CSCH_3)は、チオアセトアミドと類似の構造を有している。しかし、どちらの化合物を硫黄源として用いた場合も、硫化鉄薄膜は製造できなかった。これらの結果から、第2原料としてチオアミド化合物を用いることが重要であることがわかる。

20

請求の範囲

1. 第1原料として金属ハロゲン化物、第2原料としてチオアミド化合物を用いることを特徴とする金属硫化物薄膜の製造方法。
2. 前記金属ハロゲン化物および前記チオアミド化合物を気化させ、大気圧下
5 で反応させることを特徴とする請求項1に記載の金属硫化物薄膜の製造方法。
3. 前記金属ハロゲン化物がハロゲン化鉄であることを特徴とする請求項1または2に記載の硫化鉄薄膜の製造方法。
4. 前記ハロゲン化鉄が、 FeCl_3 と、 FeI_3 と、 FeBr_3 と、 FeCl_2
と、 FeI_2 と、 FeBr_2 とからなる群から選ばれる少なくとも1つであることを
10 を特徴とする請求項3に記載の硫化鉄薄膜の製造方法。
5. 前記チオアミド化合物がチオアセトアミドであることを特徴とする請求項1～4のいずれか1に記載の製造方法。
6. 副産物としてトリアジン化合物が生成することを特徴とする請求項1～5のいずれか1に記載の製造方法。
- 15 7. 請求項1～6のいずれか1に記載の方法により製造されたことを特徴とする金属硫化物薄膜。

FIG.1

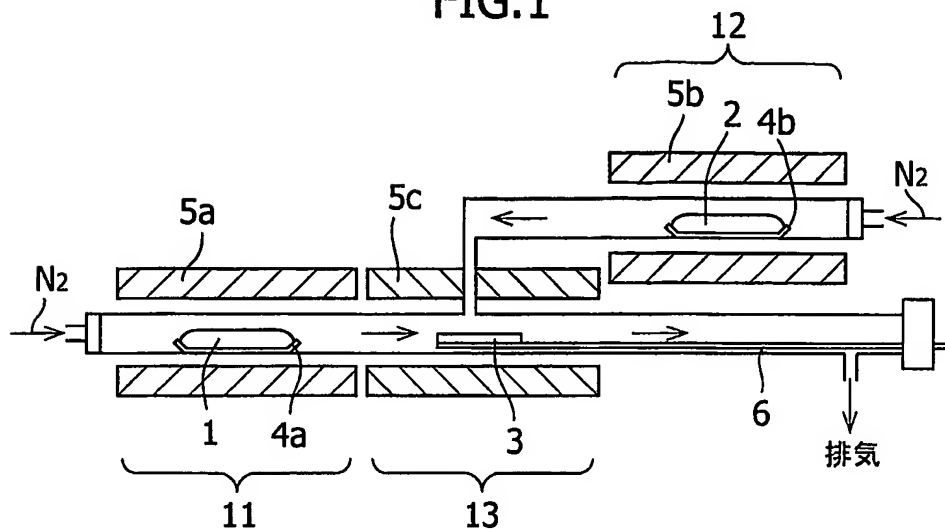


FIG.2

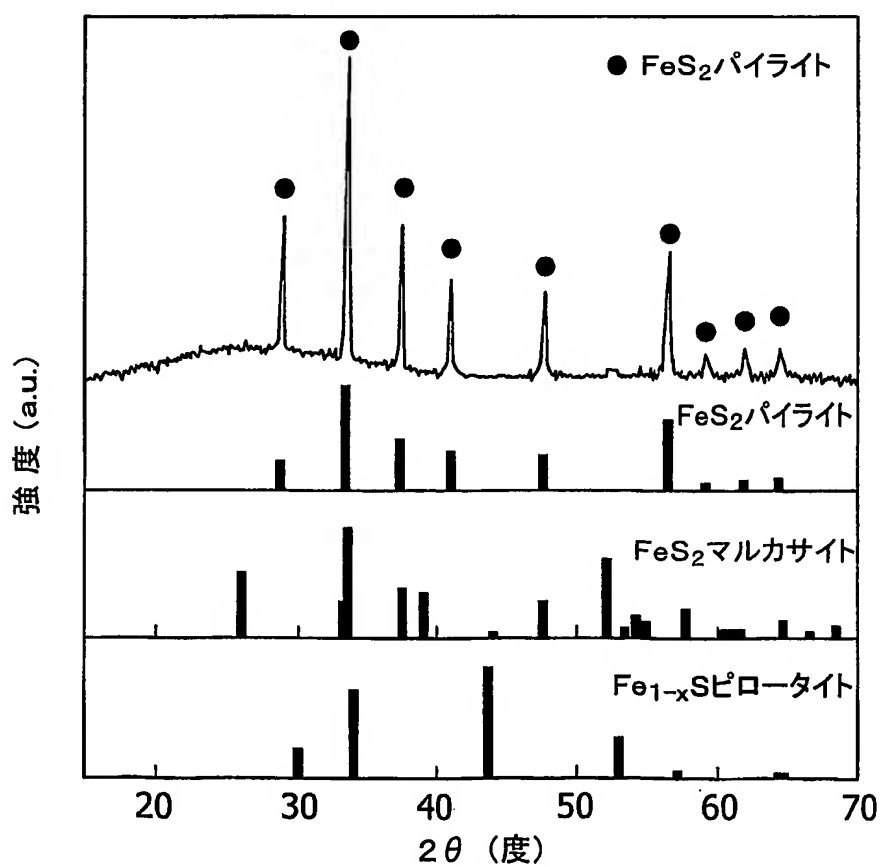


FIG.3

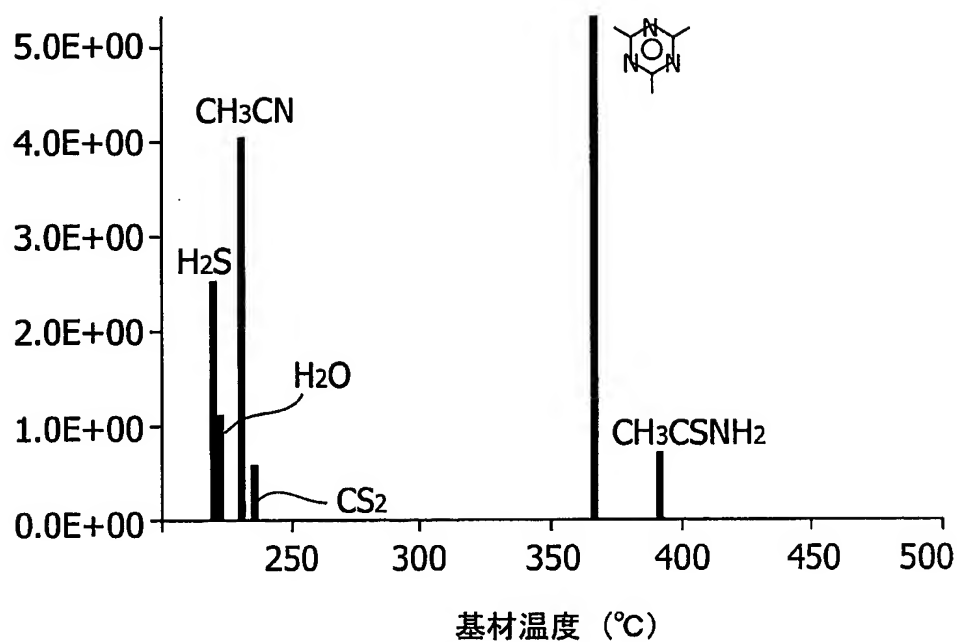
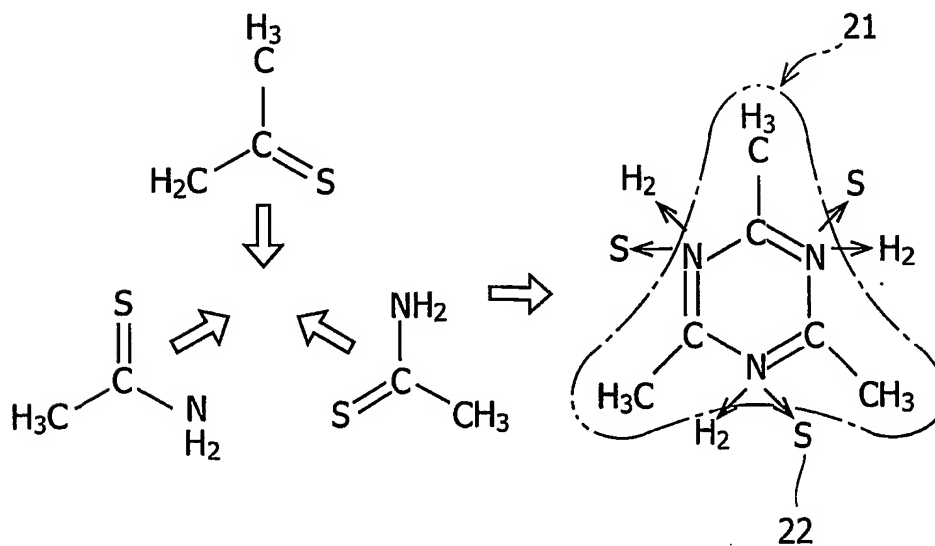


FIG.4



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10814

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C23C16/30, C01G1/12, C01G49/12, C07D251/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C23C16/30, C01G1/12, C01G49/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA file(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	N. TAKAHASHI et al., New vapor phase deposition of pyrite thin films using FeCl ₃ and CH ₃ CSNH ₂ , Journal of Materials Science Letters, 2000, Vol.19, No.24, pages 2223 to 2224	1-7
X	N. TAKAHASHI et al., Preparation of pyrite thin films by atomospheric pressure chemical vapor deposition using FeCl ₃ and CH ₃ CSNH ₂ , Journal of Materials Chemistry, 2000, Vol.10, No.10, pages 2346 to 2348	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 November, 2003 (27.11.03)

Date of mailing of the international search report
09 December, 2003 (09.12.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C23C16/30, C01G1/12, C01G49/12, C07D251/14		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C23C16/30, C01G1/12, C01G49/12		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2003年 日本国実用新案登録公報 1996-2003年 日本国登録実用新案公報 1994-2003年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CA file (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	N.Takahashi et al, New vapor phase deposition of pyrite thin films using FeCl ₃ and CH ₃ CSNH ₂ , Journal of Materials Science Letters, 2000, vol.19, No.24, p.2223-2224	1-7
X	N.Takahashi et al, Preparation of pyrite thin films by atomospheric pressure chemical vapor deposition using FeCl ₃ and CH ₃ CSNH ₂ , Journal of Materials Chemistry, 2000, vol.10, No.10, p.2346-2348	1-7
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 27.11.03	国際調査報告の発送日 09.12.03	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 官澤 尚之 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	4G 9278